

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2001-139733

(P2001-139733A)

(43) 公開日 平成13年5月22日 (2001.5.22)

(51) Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テームコード* (参考)
C 0 8 L 21/00		C 0 8 L 21/00	
C 0 8 J 5/18	C E Q	C 0 8 J 5/18	C E Q
C 0 8 K 3/34		C 0 8 K 3/34	
7/00		7/00	
C 0 8 L 83/04		C 0 8 L 83/04	

審査請求 有 請求項の数12 O L (全 12 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2000-265377(P2000-265377)

(22) 出願日 平成12年9月1日(2000.9.1)

(31) 優先権主張番号 特願平11-247368

(32) 優先日 平成11年9月1日(1999.9.1)

(33) 優先権主張国 日本 (J P)

(71) 出願人 000242231

北川工業株式会社

愛知県名古屋市中区千代田2丁目24番15号

(72) 発明者 山口 晃生

愛知県名古屋市中区千代田2丁目24番15号

北川工業株式会社内

(72) 発明者 川口 康弘

愛知県名古屋市中区千代田2丁目24番15号

北川工業株式会社内

(74) 代理人 100082500

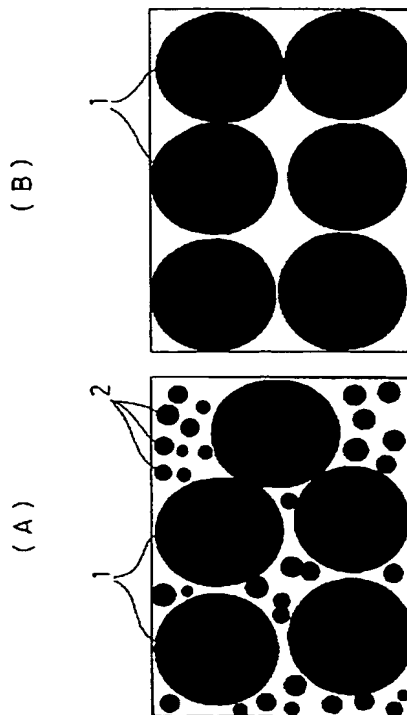
弁理士 足立 勉 (外1名)

(54) 【発明の名称】 熱伝導シート及びその製造方法

(57) 【要約】

【課題】 熱伝導フィラーを多量に充填することによって熱伝導性を良好に向上させた熱伝導シート、及びその熱伝導シートの製造方法の提供。

【解決手段】 本願出願人は、液状のシリコーンゴムに各種粒径の熱伝導フィラー（例えば炭化ケイ素）を充填し、混練・成形する実験を行った。その結果、大小2種類の平均粒径を有する熱伝導フィラーを混合して充填すると、極めて高い充填性が得られた。この理由については、おおよそ次のように考えられる。熱伝導フィラーが大きな粒子1のみから構成される場合、粒子間に隙間が空いてしまう (B)。これに対して、大きな粒子1と小さな粒子2とを混合して用いる場合、大きな粒子1の隙間を小さな粒子2が埋め、充填性が向上する (A)。そこで、熱伝導フィラーとして大小2種類の平均粒径を有するものを混合して用いることによって多量の熱伝導フィラーを充填した。



## 【特許請求の範囲】

【請求項 1】 流動性を有するゴムに熱伝導フィラーを充填し、混練・成形してなる熱伝導シートであって、上記熱伝導フィラーとして、平均粒径 50～100 $\mu$ m のものと平均粒径 10 $\mu$ m 以下のものとを、重量比 1：1～3：1 の割合で混合して用いたことを特徴とする熱伝導シート。

【請求項 2】 上記熱伝導フィラーが、多面体状の粒形を有する粉砕型の研磨用セラミックスであることを特徴とする請求項 1 記載の熱伝導シート。

【請求項 3】 上記熱伝導フィラーが、難燃性を付与する機能を有することを特徴とする請求項 1 または 2 記載の熱伝導シート。

【請求項 4】 上記熱伝導フィラーが、平均粒径 50～100 $\mu$ m のものも平均粒径 10 $\mu$ m 以下のものもいずれも炭化ケイ素であることを特徴とする請求項 3 記載の熱伝導シート。

【請求項 5】 上記熱伝導フィラーが 80wt% 以上充填されたことを特徴とする請求項 4 記載の熱伝導シート。

【請求項 6】 上記熱伝導フィラーとして、平均粒径 50～100 $\mu$ m のものと平均粒径 5～10 $\mu$ m のものとを、重量比 1：1～3：1 の割合で混合して用いたことを特徴とする請求項 1～5 のいずれかに記載の熱伝導シート。

【請求項 7】 成形後の上記ゴムが、30℃～65℃において可塑化して、接触する相手の表面形状に追従して柔軟に変形することを特徴とする請求項 1～6 のいずれかに記載の熱伝導シート。

【請求項 8】 流動性を有するゴムに熱伝導フィラーを充填し、混練・成形して熱伝導シートを製造する熱伝導シートの製造方法であって、上記熱伝導フィラーとして、平均粒径 50～100 $\mu$ m のものと平均粒径 10 $\mu$ m 以下のものとを、重量比 1：1～3：1 の割合で混合して用いることを特徴とする熱伝導シートの製造方法。

【請求項 9】 上記熱伝導フィラーとして、平均粒径 50～100 $\mu$ m のものと平均粒径 5～10 $\mu$ m のものとを、重量比 1：1～3：1 の割合で混合して用いることを特徴とする請求項 8 記載の熱伝導シートの製造方法。

【請求項 10】 流動性を有するシリコンゴムに熱伝導フィラーを充填し、混練・成形してなる熱伝導シートであって、上記シリコンゴムに対して 3～20wt% の LTV を配合したことを特徴とする熱伝導シート。

【請求項 11】 上記 LTV を上記熱伝導フィラーと共に上記シリコンゴムに配合して、混練してシート状に成形した後、特定の面を下方に向けて硬化させることによって上記熱伝導フィラーを上記特定の面側に沈殿させ粘着力を低下させたことを特徴とする請求項 10 記載の

熱伝導シート。

【請求項 12】 流動性を有するシリコンゴムに熱伝導フィラーを充填し、混練・成形して熱伝導シートを製造する熱伝導シートの製造方法であって、上記熱伝導フィラーと共に 3～20wt% の LTV をシリコンゴムに配合して混練してシート状に成形した後、特定の面を下方に向けて硬化させることを特徴とする熱伝導シートの製造方法。

## 【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、電子部品等の発熱体からの放熱を促すため、その発熱体に対して接触するように配置して使用される熱伝導シート、及びその製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】 従来より、シリコンゴムや EPDM 等のゴムに熱伝導フィラーを充填し、混練・成形してなる熱伝導シートが考えられている。この種の熱伝導シートは、電気・電子装置の内部において、例えば、発熱源となる電子部品と、放熱板や筐体パネル等といったヒートシンクとなる部品（以下、単にヒートシンクという）との間に介在させるように配置して使用される。このように熱伝導シートを配置した場合、電子部品等が発生する熱をヒートシンク側へ良好に逃がすことができる。このため、この種の熱伝導シートは、例えば CPU の高速化等のために不可欠な素材として注目を集めている。また、白金材料等のように難燃性を付与する機能を有するものを熱伝導フィラーとして使用した場合、熱伝導シートに難燃性を付与して、上記電気・電子装置の安全性を向上させることができる。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】 この種の熱伝導シートでは、熱伝導性を向上させるために一層多量の熱伝導フィラーを充填することが望まれる。しかしながら、一定量のゴムに充填可能な熱伝導フィラーの量には限界があり、同じ物質を用いている限りは熱伝導シートの熱伝導性をある一定値以上に向上させることができなかった。そこで、本発明は、熱伝導フィラーを多量に充填することによって熱伝導性を良好に向上させた熱伝導シート、及びその熱伝導シートの製造方法を提供することを目的としてなされた。特に、請求項 1～9 記載の発明は、熱伝導フィラー自身の充填性を向上させることを、請求項 10～12 記載の発明は、熱伝導フィラーを高度に充填してもシートの機械的強度（特に引き裂き強度）を良好に確保することを、それぞれ目的としてなされた。

【0004】

【課題を解決するための手段及び発明の効果】 上記目的を達するためになされた請求項 1 記載の発明は、流動性を有するゴムに熱伝導フィラーを充填し、混練・成形してなる熱伝導シートであって、上記熱伝導フィラーとし

て、平均粒径  $50 \sim 100 \mu\text{m}$  のものと平均粒径  $10 \mu\text{m}$  以下のものとを、重量比  $1:1 \sim 3:1$  の割合で混合して用いたことを特徴とする。

【0005】本願出願人は、液状のシリコンゴムに各種粒径の熱伝導フィラーを充填し、混練・成形する実験を行った。その結果、大小2種類の平均粒径を有する熱伝導フィラーを混合してシリコンゴムに充填したところ、極めて高い充填性が得られることを発見した。また、この特性は、EPDM等の他のゴムに対しても同様に観察された。この理由は、おおよそ次のように考えられる。図1(B)に示すように、熱伝導フィラーが大きな粒子1のみから構成される場合、どうしても粒子間に隙間が空いてしまう。これに対して、大きな粒子1と小さな粒子2とを混合して用いる場合、図1(A)に示すように、大きな粒子1の隙間を小さな粒子2が埋め、充填性が向上する。

【0006】しかも、本発明では、熱伝導フィラーとして、平均粒径  $50 \sim 100 \mu\text{m}$  のもの（大きな粒子1）と平均粒径  $10 \mu\text{m}$  以下のもの（小さな粒子2）とを、重量比  $1:1 \sim 3:1$  の割合で混合して用いている。このため、次のように、熱伝導フィラーの充填性が一層向上する。

【0007】すなわち、熱伝導フィラーを球状と仮定した場合、図2に示すように四つの大きな粒子1を正四面体状に緊密充填したときにその中に一つの小さな粒子2が配設できるためには、小さな粒子2の直径が大きな粒子1の直径の  $6^{1/3} / 2 - 1$  ( $\approx 0.225$ ) 倍以下であることが必要となる。本発明では、大きな粒子1の平均粒径を  $50 \sim 100 \mu\text{m}$ 、小さな粒子2の平均粒径を  $10 \mu\text{m}$  ( $< 50 \mu\text{m} \times 0.225$ ) 以下としているので、緊密充填された大きな粒子1の隙間にも小さな粒子2を良好に充填することができる。よって、熱伝導フィラーの充填性を一層良好に向上させることができる。

【0008】更に、図3に示すようにパチンコ球Pを大きな粒子1に見立てた実験では、(A)に示すようにパチンコ球Pを整列配置した後、そのパチンコ球Pを挟む割り箸Qを近接させると、(B)に示すようにパチンコ球Pの間に隙間が生じることが分かる。このことから、熱伝導フィラーとして大きな粒子1のみを使用した場合、熱伝導シートに圧力が加わると粒子間に隙間が生じる可能性があることが分かる。ところが、本発明では、小さな粒子2を混合して用いることにより上記隙間を良好に埋めて一層熱伝導性を向上させることができる。

【0009】また、大きな粒子1のみを使用すると、混練時に粒子間には摩擦抵抗が作用するため、これによっても粒子間の隙間が大きくなる。これに対して、大きな粒子1と小さな粒子2とを混合して用いる場合、小さな粒子2が大きな粒子1の間に挟まれるため、この粒子2がコロとして作用して摩擦抵抗を低減する。このため、粒子間の隙間が小さくなり、充填性が向上する。更に、

小さな粒子2のみを用いても返って充填性が低下する。また更に、図1(A)のように大小2種類の粒子1, 2を用いた場合、1種類の粒子を用いる場合に比べて充填後のゴムが低粘度となり、粒子が逃げる隙間があるため、混練時における攪拌機羽等の摩耗量も低減することができる。

【0010】このため、本発明では、前述のように多量の熱伝導フィラーを良好に充填することができ、こうして得られた熱伝導シートも良好な熱伝導性を有する。また、本発明では、熱伝導フィラー充填後のゴムが低粘度となっており、しかも、混練時における攪拌機羽等の摩耗量も低減することができるので、製造を容易にすると共に製造コストを低減することができる。

【0011】請求項2記載の発明は、請求項1記載の構成に加え、上記熱伝導フィラーが、多面体状の粒形を有する粉砕型の研磨用セラミックスであることを特徴とする。研磨用のセラミックスは、焼結用等の一般的なセラミックスに比べて、極めてシャープな粒度分布を有する。このため、大小2種類の粒子を混合することによって生じる上記効果が、一層顕著に表れる。また、粉砕型の研磨用セラミックスは極めて安価であるが、多面体状の粒形を有するため、熱伝導フィラー同士の接触点が少なくなっており従来は充分な熱伝導性が得られなかった。このため、従来は、比較的高価な造粒型の熱伝導フィラーを使用せざるを得なかった。これに対して、本発明では、大きな粒子の隙間を小さな粒子が埋めるので、多面体状の粉砕型セラミックスを熱伝導フィラーとして用いてもその熱伝導フィラー同士の接触点を良好に確保することができる。

【0012】このように、本発明では、大小2種類の粒子を混合することによって生じる上記効果を一層顕著にすると共に、熱伝導フィラーにかかるコストも低減することができる。従って、本発明では、請求項1記載の発明の効果に加えて、多量の熱伝導フィラーを一層良好に充填することができ、こうして得られた本発明の熱伝導シートは一層良好な熱伝導性を有すると共に、安価な熱伝導フィラーを利用しかつその製造を一層容易にし、製造コストを一層良好に低減することができるといった効果が生じる。

【0013】請求項3記載の発明は、請求項1または2記載の構成に加え、上記熱伝導フィラーが、難燃性を付与する機能を有することを特徴とする。本発明では、熱伝導フィラーが難燃性を付与する機能を有しているので、熱伝導シートの難燃性を良好に向上させることができる。しかも、本発明では、請求項1または2記載の発明と同様に多量の熱伝導フィラーを良好に充填することができるので、こうして得られた熱伝導シートは極めて良好な難燃性を有する。

【0014】請求項4記載の発明は、請求項3記載の構成に加え、上記熱伝導フィラーが、平均粒径  $50 \sim 10$

0  $\mu\text{m}$  のものも平均粒径 10  $\mu\text{m}$  以下のものもいずれも炭化ケイ素であることを特徴とする。炭化ケイ素は、白金材料等比べて極めて安価であるが、多量に充填しなければ十分な難燃性が得られない。これに対して、本発明では、請求項 3 記載の発明と同様に多量の熱伝導フィラー（炭化ケイ素）を良好に充填することができるので、十分な難燃性が得られる。また、本発明では大きな熱伝導フィラーも小さな熱伝導フィラーも同一物質を使用しているので、類似粒形の粒子を得ることができ、粒径の大小の選択が一層容易になる。そして、上記 2 種類の平均粒径を有する熱伝導フィラーを混合して用いたことによる作用・効果が一層顕著に現れる。

【0015】従って、本発明では、請求項 3 記載の発明の効果が一層顕著に表れると共に、良好な難燃性を確保しつつ製造コストを一層良好に低減することができるといった効果が生じる。また、本発明において上記ゴムとしてシリコンゴムを適用した場合、廃棄処理する材にシリコン成分が少なく、焼却処分がし易くなる。

【0016】請求項 5 記載の発明は、請求項 4 記載の構成に加え、上記熱伝導フィラーが 80 wt % 以上充填されたことを特徴とする。本発明では、熱伝導フィラーとしての炭化ケイ素を 80 wt % 以上充填しているので極めて良好な難燃性が得られ、難燃助剤を必要としない。また、このような高度な充填量も、請求項 1 に関して説明した効果によって容易に達成される。

【0017】従って、本発明では、請求項 4 記載の発明の効果に加えて、難燃助剤を必要とせず、製造コストを一層良好に低減することができるといった効果が生じる。請求項 6 記載の発明は、請求項 1～5 のいずれかに記載の構成に加え、上記熱伝導フィラーとして、平均粒径 50～100  $\mu\text{m}$  のものと平均粒径 5～10  $\mu\text{m}$  のものとを、重量比 1：1～3：1 の割合で混合して用いたことを特徴とする。

【0018】すなわち、本発明では、平均粒径 10  $\mu\text{m}$  以下の熱伝導フィラーとして、平均粒径 5～10  $\mu\text{m}$  のものを使用している。平均粒径 10  $\mu\text{m}$  以下の熱伝導フィラーとしてこのような平均粒径を有するものを使用した場合、最も良好な熱伝導性及び成形性が得られることが実験により判明した。

【0019】このように、本発明では、平均粒径 10  $\mu\text{m}$  以下の熱伝導フィラーとして平均粒径 5～10  $\mu\text{m}$  のものを使用しているので、請求項 1～5 のいずれかに記載の発明の効果に加えて、熱伝導シートの熱伝導性及び成形性を一層良好に向上させることができるといった効果が生じる。

【0020】請求項 7 記載の発明は、請求項 1～6 のいずれかに記載の構成に加え、成形後の上記ゴムが、30℃～65℃において可塑化して、接触する相手の表面形状に追随して柔軟に変形することを特徴とする。本発明では、成形後の上記ゴムが 30℃～65℃において可塑

化して、接触する相手の表面形状に追随して柔軟に変形する。このため、常温（20℃前後）で使用する場合には、本発明の熱伝導シートは適度な硬さを有し、手等にくっつくことがないので熱伝導シートを電子部品等の近傍に配置する作業が容易である。

【0021】一方、電子部品等の温度が上昇して例えば 30℃～60℃になった場合には、熱伝導シートが可塑化し、接触する相手の電子部品の表面形状に追従して柔軟に変形する。このため、電子部品から効率よく熱を奪い、その電子部品の温度上昇を良好に抑制することができる。また、電子部品の OFF によりその電子部品の温度が常温に低下すれば、本発明の熱伝導シートは前述のように適度な硬さを有するので、電子部品から本発明を剋す作業も容易となる。

【0022】従って、本発明では、請求項 1～6 のいずれかに記載の発明の効果に加えて、電子部品等への着脱を一層容易にすると共にその電子部品等から一層効率よく熱を奪うことができるといった効果が生じる。なお、ここで可塑化するとは、熱により（接触する相手の表面形状に追随できる程度に）柔軟化することをいう。

【0023】請求項 8 記載の発明は、流動性を有するゴムに熱伝導フィラーを充填し、混練・成形して熱伝導シートを製造する熱伝導シートの製造方法であって、上記熱伝導フィラーとして、平均粒径 50～100  $\mu\text{m}$  のものと平均粒径 10  $\mu\text{m}$  以下のものとを、重量比 1：1～3：1 の割合で混合して用いることを特徴とする。

【0024】本発明では、流動性を有するゴムに熱伝導フィラーを充填し、混練・成形して熱伝導シートを製造するに当たって、熱伝導フィラーとして、平均粒径 50～100  $\mu\text{m}$  のものと平均粒径 10  $\mu\text{m}$  以下のものとを、重量比 1：1～3：1 の割合で混合して用いている。このため、前述のように多量の熱伝導フィラーを良好に充填することができ、こうして得られた熱伝導シートも良好な熱伝導性を有する。また、本発明では、熱伝導フィラー充填後のゴムが低粘度となっており、しかも、混練時における攪拌機羽等の摩耗量も低減することができるので、製造を容易にすると共に製造コストを低減することができる。従って、本発明では、良好な熱伝導性を有する熱伝導シートを容易に製造することができ、その製造コストも良好に低減することができるといった効果が生じる。

【0025】請求項 9 記載の発明は、請求項 8 記載の構成に加え、上記熱伝導フィラーとして、平均粒径 50～100  $\mu\text{m}$  のものと平均粒径 5～10  $\mu\text{m}$  のものとを、重量比 1：1～3：1 の割合で混合して用いることを特徴とする。すなわち、本発明では、平均粒径 10  $\mu\text{m}$  以下の熱伝導フィラーとして、平均粒径 5～10  $\mu\text{m}$  のものを使用している。このため、請求項 6 に関連して説明したように、本発明では、請求項 8 記載の発明の効果に加えて、熱伝導シートの熱伝導性及び成形性を一層良好

に向上させることができるといった効果が生じる。

【0026】請求項10記載の発明は、流動性を有するシリコンゴムに熱伝導フィラーを充填し、混練・成形してなる熱伝導シートであって、上記シリコンゴムに対して3～20wt%のLTVを配合したことを特徴とする。本願出願人は、流動性を有するシリコンゴムに熱伝導フィラーを充填し、混練・成形して熱伝導シートを製造するに当たり、硬化遅延剤としてのLTVを3～20wt%（通常のシリコンゴムで一般に使用される量の約100倍）使用することによりハンドリング性、

タック性、及び折れに対する特性が向上することを発見した。また、このように多量のLTVを使用した場合、シートの引き裂き強度も良好に向上することが分かった。

【0027】本発明の熱伝導シートは、シリコンゴムに対して3～20wt%のLTVが配合されているので、ハンドリング性、タック性、及び折れに対する特性が良好であると共に、良好な引き裂き強度を有している。従って、本発明の熱伝導シートを電子部品等に配設したり電子部品等から引き剥がしたりする作業も極めて容易となり、従来0.5mmのシートには必要であったが

ガラスクロス等も必要ではない。

【0028】請求項11記載の発明は、請求項10記載の構成に加え、上記LTVを上記熱伝導フィラーと共に上記シリコンゴムに配合して、混練してシート状に成形した後、特定の面を下方に向けて硬化させることによって上記熱伝導フィラーを上記特定の面側に沈殿させ粘着力を低下させたことを特徴とする。

【0029】LTVを前述のように多量に使用すると熱伝導シートの硬化が大幅に遅延される。このため、上記LTVを熱伝導フィラーと共にシリコンゴムに配合して混練してシート状に成形した後、特定の面を下方に向けて硬化させれば、熱伝導フィラーは上記特定の面側に沈殿する。すると、上記特定の面はその反対面に比べて粘着力が低下する。

【0030】この場合、上記特定の面またはその反対面を電子部品等に被着することにより電子部品等とヒートシンクとの間に熱伝導シートを配設した後、上記電子部品等をヒートシンクから引き剥がしたとき、熱伝導シートが電子部品またはヒートシンクの所望の側に必ず付着するようにすることができる。また、熱伝導シートの両面にPETフィルム等を被着して使用時に剝がすようにした場合、PETフィルム等は必ず上記特定の面の側から剝がすことができる。

【0031】従って、本発明では、請求項10記載の発明の効果に加えて、電子部品等への着脱やPETフィルム等の剥離を一層容易とすることができるといった効果が生じる。なお、本発明及び次の請求項12記載の発明という硬化とは、ある程度の弾性を有するゴム状態となる場合も含む。

【0032】請求項12記載の発明は、流動性を有するシリコンゴムに熱伝導フィラーを充填し、混練・成形して熱伝導シートを製造する熱伝導シートの製造方法であって、上記熱伝導フィラーと共に3～20wt%のLTVをシリコンゴムに配合して混練してシート状に成形した後、特定の面を下方に向けて硬化させることを特徴とする。

【0033】このように、本発明では、流動性を有するシリコンゴムに熱伝導フィラーを充填し、混練・成形して熱伝導シートを製造するに当たって、熱伝導フィラーと共に3～20wt%のLTVをシリコンゴムに配合して混練してシート状に成形した後、特定の面を下方に向けて硬化させている。このため、熱伝導フィラーは上記特定の面側に沈殿し、その特定の面の粘着力が低下する。従って、本発明では、面によって粘着力が異なる熱伝導シートを容易に製造することができるといった効果が生じる。このため、請求項10及び請求項11に関連して説明したように、本発明の方法で製造された熱伝導シートは電子部品等への着脱やPETフィルム等の剥離が容易で、引き裂き強度にも優れている。

【0034】

【発明の実施の形態】次に、本発明の実施の形態を説明する。本実施の形態では、以下の製造方法により熱伝導シートを製造した。すなわち、液状シリコンゴム100重量部と、熱伝導フィラーとしての炭化ケイ素（SiC）400重量部とを混合することにより、シリコンゴムに熱伝導フィラーを充填した。上記混合の方法としては、真空脱泡ミキサー等の機械を用いて混練する方法の他、押し出し、2本ロール、ニーダ、バンバリーミキサー等の種々の方法を適用することができる。この内、ミキサーを使用して混練する場合、作業性が向上する点で望ましい。また、上記炭化ケイ素としては、大小2種類の平均粒径を有するもの（例えば、平均粒径50～100μmのものと平均粒径10μm以下のもの）を混合して用いた。

【0035】続いて、このように炭化ケイ素を混練した液状シリコンゴムを成形した。この成形の方法としては、コーター、カレンダーロール、押し出し、プレス等の機械を用いて成形する方法等、種々の方法を適用することができる。この内、コーターを用いて成形する場合、薄いフィルムの作製が簡単にできる、生産性がよい、大量生産に向いている、フィルムの厚み精度が出し易い、といった点で望ましい。

【0036】このようにして製造された熱伝導シートでは、前述のように炭化ケイ素を80wt%以上も混合しているにも拘わらず、その炭化ケイ素を液状シリコンゴムに良好に充填することができた。この理由は未だ不明な点もあるが、本願出願人は、大小2種類の平均粒径を有する熱伝導フィラーを混合してシリコンゴムに充填すると、極めて高い充填性が得られることを発見して

おり、本実施の形態でも大小2種類の炭化ケイ素を混合して用いたためと考えられる。

【0037】本実施の形態では、このように、炭化ケイ素を80wt%以上充填しているのので、その炭化ケイ素によって熱伝導シートに極めて良好な熱伝導性及び難燃性が与えられ、難燃助剤を添加する必要がない。しかも、炭化ケイ素は、同じく難燃性を付与する機能を有する白金材料等の熱伝導性フィラーに比べて安価である。従って、上記実施の形態では、熱伝導シートの熱伝導性及び難燃性を良好に向上させると共に、その製造コストを極めて良好に低減することができる。

【0038】また、本実施の形態では、大小2種類の炭化ケイ素を用いているのので、1種類の粒子を用いる場合に比べて充填後のシリコンゴムが低粘度となり、粒子が逃げる隙間があるため、混練時における攪拌機羽等の摩耗量も低減することができた。従って、製造を容易にすると共に製造コストを一層低減することができた。なお、上記大小2種類の炭化ケイ素の組み合わせとしては、平均粒径50～100 $\mu$ mのものと平均粒径10 $\mu$ m以下のものとを、重量比1:1～3:1の割合で混合し、熱伝導フィラーとすることが望ましい。

【0039】更に、炭化ケイ素は研磨用のセラミックスであり、焼結用等の一般的なセラミックスに比べて、極めてシャープな粒度分布を有する。例えば、焼結用セラミックス（商品名：ウルトラデンシックDU、製造元：昭和電工、主成分：SiC、平均粒径：3.2 $\mu$ m）は、図5に示すように幅広い粒度分布を有するのに対して、研磨用セラミックス（商品名：デンシックGC、製造元：昭和電工、主成分：SiC、平均粒径：5 $\mu$ m）は、図4に示すように極めてシャープな粒度分布を有している。なお、研磨用セラミックスとしては、GC#2500（商品名、製造元：太平洋ランダム）やET#2500（商品名、製造元：ワッカーケミカルESアジア）も同様の特性を示す。

【0040】このため、大小2種類の粒子を混合することによって生じる上記効果が、一層顕著に表れる。すなわち、多量の熱伝導フィラーを一層良好に充填することができ、こうして得られた熱伝導シートが一層良好な熱伝導性を有すると共に、その製造を一層容易にし、製造コストを一層良好に低減することができる。しかも、本実施の形態では、シリコンゴムと炭化ケイ素とを組み合わせ

\* 成分が少なく、焼却処分がし易くなる。

【0041】更に、上記研磨用セラミックスは粉碎型であるため造粒型のものに比べて極めて安価である。従って、熱伝導シートの製造コストを一層低減することができる。ここで、粉碎型の研磨用セラミックスは、図6

(A)、(B)の顕微鏡写真に示すように多面体状の粒形を有するため、これを熱伝導フィラーとして用いた場合には熱伝導フィラー同士の接触点が少なくなつて従来は充分な熱伝導性が得られなかった。このため、従来は、比較的高価な造粒型の熱伝導フィラーを使用せざるを得なかった。これに対して、本実施の形態では前述のように大小2種類の粒子を混合しているのので、大きな粒子の隙間を小さな粒子が埋め、多面体状の粉碎型セラミックスを熱伝導フィラーとして用いてもその熱伝導フィラー同士の接触点を良好に確保することができる。このため、安価な粉碎型の研磨用セラミックスを熱伝導フィラーとして用いても良好な熱伝導性を得ることができる。

【0042】

【実施例】次に、上記実施の形態の熱伝導シートを、炭化ケイ素の平均粒径や、大粒径と小粒径との混合比等を種々に変更して製造し、その特性を調査した。なお、液状シリコンゴムとしては、「CY52-276」（商品名、製造元：東レ・ダウ）を使用し、炭化ケイ素としては「デンシックGC」（商品名、製造元：昭和電工）を使用した。また、前述のように混練した液状シリコンゴムには、120℃、12分、 $t=2$ mmの加硫条件で加硫を施して成形した。各種粒径及び混合比等に対応する実施例の特性を、以下の表1～表4に示す。

【0043】表1は、大粒径の炭化ケイ素と小粒径の炭化ケイ素との混合比を3:2に固定すると共に、それら炭化ケイ素を合計したシリコンゴムに対する充填量（フィラー充填量）を81.4wt%に固定した上で、大粒径の炭化ケイ素及び小粒径の炭化ケイ素のそれぞれの平均粒径の比を種々に変更してその特性を調査したものである。表1に示すように、上記平均粒径の比を10:1程度に設定した場合に極めて良好な成形性が得られ、特に、100 $\mu$ mまたは90 $\mu$ mのものと5～10 $\mu$ mのものとを混合した場合、最も優れた熱伝導性及び成形性が得られた。

【0044】

【表1】

	100 $\mu$ m	90 $\mu$ m	80 $\mu$ m	30~60 $\mu$ m	10~20 $\mu$ m	5~10 $\mu$ m	1~3 $\mu$ m
100 $\mu$ m							
90 $\mu$ m	×						
80 $\mu$ m	×	×					
30~60 $\mu$ m	×	×	×				
10~20 $\mu$ m	●(2.3W)	●(2.4W)	●(2.4W)	×			
5~10 $\mu$ m	◎(3.5W)	◎(3.5W)	●(2.4W)	●(2.7W)	×		
1~3 $\mu$ m	●(2.4W)	●(2.4W)	●(2.4W)	●(2.8W)	×	×	

フィラー充填量 81.4 wt% 大粒径：小粒径 = 3：2

◎：成形可能で、熱伝導率が3 W/m・K以上  
 ●：成形可能であるが、熱伝導率が3 W/m・Kを超えない  
 ×：成形、混練不能

【0045】なお、表1における熱伝導率（括弧内の数値：単位W/m・K）は、熱線法を応用して測定する機械QTM-500（商品名：京都電子製）によって測定した。測定に当たっては、シートサイズが100×50×2mmの試料に一定電力を与え続けると共に、ヒータ線の温度上昇を記録し、その温度勾配から試料の熱伝導率を測定した。また、後述の他の表についても同様に熱

20 伝導率を測定した。  
 \*ては、粒径が大きなものほど、比表面積が小さいため粒子を覆う樹脂量が少なくて済み、コンポジットが低粘度なためと考えられる。

【0047】表2は、平均粒径90 $\mu$ mの炭化ケイ素と平均粒径5 $\mu$ m炭化ケイ素とに対し、その混合比を種々に変更してその特性を調査したものである。表2に示すように、大粒径：小粒径の混合比を3：2に設定した場合、最も優れた熱伝導性、柔軟性、及び成形性が得られた。なお、表2以降における熱伝導性及び硬度の単位は表1と同様である。

【0048】

【表2】

大粒径：小粒径	1:4	1:2	1:1	3:2	2:1	3:1	4:1	8:1
熱伝導率	—	—	3.31	3.50	3.41	2.48	—	—
硬度	—	—	65	64	65	65	—	—
成形性	×	×	○	◎	○	○	×	×

フィラー充填量 81.4 wt%

【0049】炭化ケイ素の混合比によってこのような特性の相違が生じる理由は、次のように考えられる。まず、熱伝導性については、大きな粒子の隙間を埋める粒子の数が減ると熱伝導率が低下するためと考えられる。柔軟性については、大きな粒子に対して小さな粒子が多すぎても少なすぎても、柔軟性を損なうためと考えられる。更に、成形性については、大きな粒子に対して小

40 さいな粒子が多すぎても少なすぎても、コンポジットの粘度が大きくなり成形性が悪くなってしまうためと考えられる。  
 ※平均粒径5 $\mu$ mの炭化ケイ素とを3：2で混合した熱伝導性フィラーを、その充填量を種々に変更して充填し（2粒子系）、平均粒径30~60 $\mu$ mの炭化ケイ素のみを用いた1粒子系とで充填性を比較したものである。表3に示すように、前述のように大小2種類の平均粒径を有するものを混合して使用したことにより、2粒子系では極めて良好に充填性が向上している。そして、1粒子系では、上記表1、表2に示したような80%以上の充填量を達成することは困難であった。

【0051】

【表3】

【0050】表3は、平均粒径90 $\mu$ mの炭化ケイ素と※

充填量 (wt%)	2 粒子系		1 粒子系	
	熱伝導率	充填性	熱伝導率	充填性
60	1.2	◎	0.71	◎
65	1.5	◎	0.89	◎
70	2.0	◎	1.05	◎
75	2.4	◎	1.27	◎
80	2.9	◎	1.67	△
81.5	3.5	◎	—	×
83	4.2	○	—	×
85	約5.0	△	—	×
86	—	×	—	×

◎：充填性非常に良、○：充填性良、△：充填性悪い、×：充填不能

【0052】また、表3に示すように、炭化ケイ素の充填量が増加するに伴って熱伝導シートの熱伝導率が向上している。ここで、炭化ケイ素の充填量が同じであっても、2粒子系の方が1粒子系よりも優れた熱伝導率を呈しているが、これは、次のような理由によるものと考えられる。すなわち、1粒子系では、大きな粒子のみの充填となり、どうしても隙間が空いてしまう。一方、2粒子系では、大きな粒子の隙間を小さな粒子が埋めるために、熱伝導率が向上するのである。

【0053】表4は、平均粒径90 $\mu$ mの炭化ケイ素と平均粒径5 $\mu$ mの炭化ケイ素とを3：2で混合した熱伝導性フィラーを、81.5wt%の充填量で充填した試\*

\* 料に対し、シリコーンゴムへのLTV（アセチルアルコール類、マレイン酸エステル類）の配合を種々に変更してその特性を比較したものである。表4に示すように、LTVの量が多くなるにつれて、ハンドリング性は良好になるがタック性や折れに対する特性が悪化する。本実施例では、LTVを3～20wt%とした配合が最適であることが判る。これは、通常のシリコーンゴムで一般的に採用される約0.025wt%の配合に比べて多くなっている。

【0054】

【表4】

LTV量 (wt%)	タック性	ハンドリング	折れ
0 wt%	◎	△	◎
0.05 wt%	◎	△	◎
1.0 wt%	◎	△	◎
2.0 wt%	◎	△	◎
3.0 wt%	○	○	○
7.0 wt%	○	○	○
10 wt%	○	○	○
20 wt%	×	○	△
33.3 wt%	×	○	×

◎：非常に良い、○：良い、△：悪い、×：非常に悪い

【0055】更に、このように多量のLTVを配合した場合、ロールを用いた成形機によって熱伝導シートを成形すると一層顕著な効果が生じる。図7は、この種の成形機51の構成を概略的に表す説明図である。図7に示すように、この成形機51では、装置の上方に巻回保持されたPETフィルム91がロール53、55を介して搬送され、装置の下方に巻回保持されたPETフィルム

93がロール57、59を介して搬送される。ロール55とロール59とは熱伝導シートの厚さに対応した隙間を開けて対向配置され、その間に搬送されるPETフィルム93の上には材料タンク61に設けられた材料注入口63から熱伝導シートの材料95（上記シリコーンゴム及び熱伝導フィラーをLTVを配合して混練したもの）が供給される。



【0056】すると、この材料95はロール55、59の間にPETフィルム91、93を介して挟まれることによってシート状に成形される。続いて、この材料95は、材料乾燥を行う常温の第1ゾーン71、加硫を行う第2ゾーン73、同じく加硫を行う第3ゾーン75、及び、更に同じく加硫を行う第4ゾーン77を経て搬送される。この間、材料95は特定の面(PETフィルム93が貼着された面)を下方に向けたまま略水平に搬送される。

【0057】なお、成形機51では、第1ゾーン71の長さを2mとし、第2ゾーン73、第3ゾーン75、及び第4ゾーン77を合わせた長さを8mとした。材料95はPETフィルム91、93と共に第1ゾーン71～第4ゾーン77を毎分約1mの速度で搬送されるので、材料95の上記特定面は加硫が終了するまでの間約10分間下方に向けられることになる。また、本実施例では、PETフィルム91の厚さを100 $\mu$ m、PETフィルム93の厚さを50 $\mu$ mとした。

【0058】本実施例では、硬化遅延剤としてのLTVを前述のように多量に使用しているので、このように材料95の特定面を下方に向けて加硫による硬化を行うと、硬化するまでの間に熱伝導フィラーが上記特定面側に沈殿する。すると、この特定面はその反対面に比べて粘着力が低下し、次のような種々の効果が生じる。

【0059】材料95が硬化して形成された熱伝導シートを使用する際、PETフィルム91、93を剝がすが、この場合、粘着力の弱い上記特定面側に被着されたPETフィルム93の側から剝がすことができる。また、この傾向はPETフィルム93をPETフィルム91よりも薄肉に構成したことによって一層顕著になる。

【0060】更に、上記特定の面またはその反対面を電子部品等に被着することにより、電子部品等とヒートシンクとの間に上記熱伝導シートを配置して使用してから上記電子部品等をヒートシンクから引き剥がすとき、熱伝導シートが電子部品またはヒートシンクの所望の側に必ず付着するようにすることができる。従って、電子部品等への着脱やPETフィルム等の剥離を一層容易とすることができる。また更に、LTVを多量に使用することにより、前述のようにハンドリング性、タック性、及び折れに対する特性が向上するのみならず、引き裂き強度も向上する。従って、本実施例では、熱伝導シートを電子部品等に配設したり電子部品等から引き剥がしたりする作業が一層容易となる。特に、0.5mmなどの薄膜であってもガラスクロス等を用いる必要がなくなるため、低コスト化、低熱抵抗化が図れる。なお、このように熱伝導フィラーを熱伝導シートの片面に沈殿させるためには、プレス等の方法を用いてもよい。但し、上記ローラによる成型法はプレス等に比べてコスト的に有利である。

【0061】以上説明したように、本実施例の熱伝導シ

ートは、良好な熱伝導率及び成形性を有すると共に、攪拌機羽等の摩耗量も低減することができる。このため、上記製造方法によって熱伝導シートを製造すれば、良好な熱伝導率を有する熱伝導シートを容易に製造することができる。更に、上記熱伝導シートは、炭化ケイ素の特性により、良好な難燃性を有している。

【0062】なお、上記実施例において、シリコーンゴムとしてTSE3065(商品名、製造元:東芝シリコーン)を使用しても同様の結果が得られる。また、本発明は上記実施の形態に何等限定されるものではなく、本発明の要旨を逸脱しない範囲で種々の形態で実施することができる。例えば、熱伝導フィラーとしてはSiC以外にも種々のものを使用することができ、研磨用のセラミックスでなくてもよい。また、ゴムとしては、EPDM等の有機合成ゴムを適用することもできる。

【0063】更に、ゴムとしては、本願出願人が特願2000-166173号で提案したように、成形後においても30℃～65℃で可塑化するオレフィン系樹脂(例えば、分子量7000～50000の未加硫EPDM)を使用してもよい。この場合、常温(20℃前後)で使用する場合には熱伝導シートが適度な硬さを有し、手等にくっつくことがないので熱伝導シートを電子部品等の近傍に配置する作業が容易である。一方、電子部品等の温度が上昇して例えば30℃～60℃になった場合には、熱伝導シートが可塑化し、接触する相手の電子部品の表面形状に追従して柔軟に変形するため、電子部品から効率よく熱を奪うことができる。また、電子部品のOFFによりその電子部品の温度が常温に低下すれば、熱伝導シートが前述のように適度な硬さを有するので、電子部品から本発明を剝がす作業も容易となる。従って、この場合、電子部品等への着脱を一層容易にすると共にその電子部品等から一層効率よく熱を奪うことができる。

#### 【図面の簡単な説明】

【図1】 本発明の原理を概略的に表す説明図である。

【図2】 その原理の内、粒径に関して更に詳細に表す説明図である。

【図3】 その原理の内、外圧に関して更に詳細に表す説明図である。

【図4】 研磨用セラミックスの粒度分布を表すグラフである。

【図5】 焼結用セラミックスの粒度分布を表すグラフである。

【図6】 研磨用セラミックスの粒形を表す顕微鏡写真である。

【図7】 ロールを用いた成形機の構成を概略的に表す説明図である。

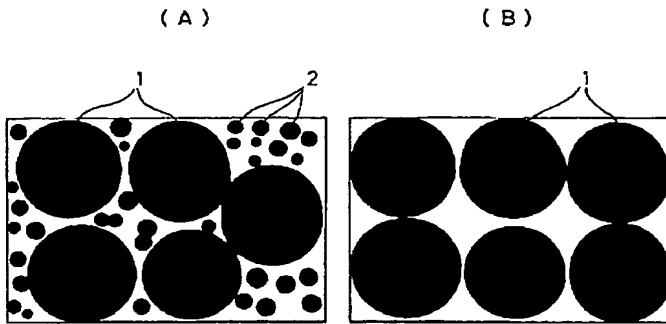
#### 【符号の説明】

1、2…粒子                      51…成形機                      53、5  
5、57、59…ロール

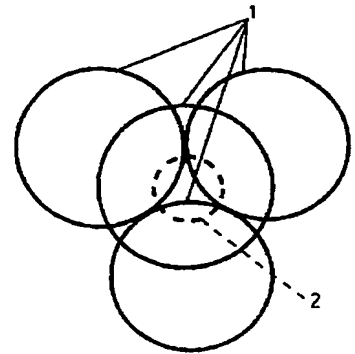
91, 93...PETフィルム

95...材料

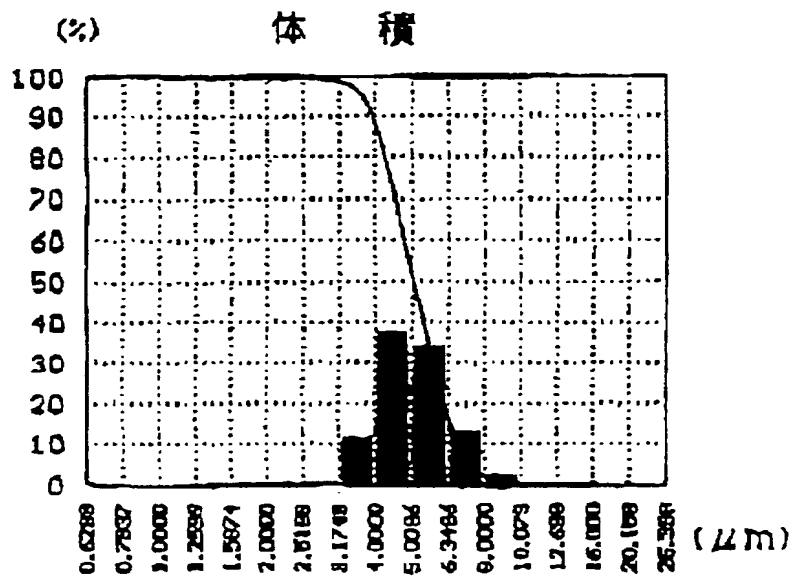
【図1】



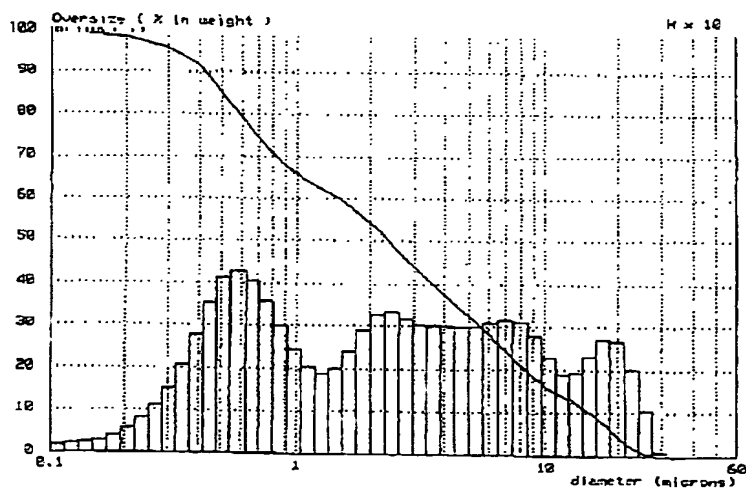
【図2】



【図4】

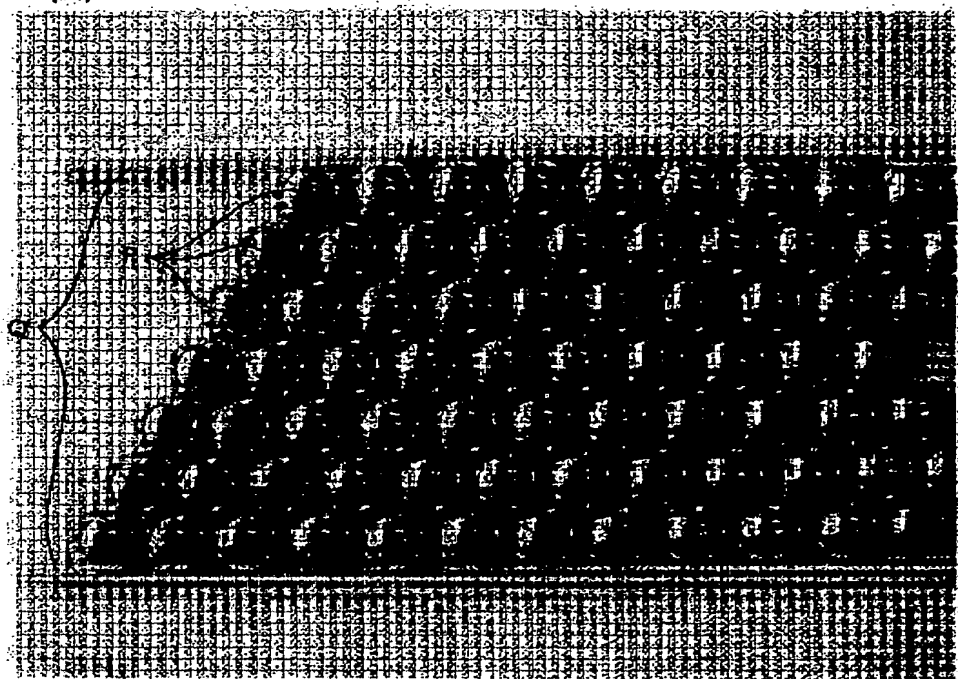


【図5】

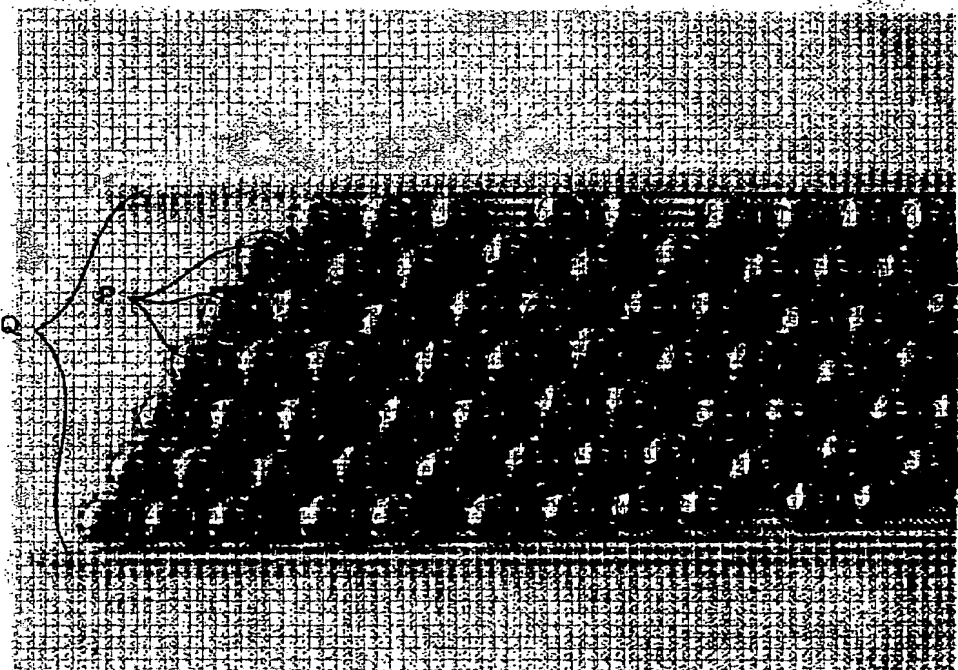


【図3】

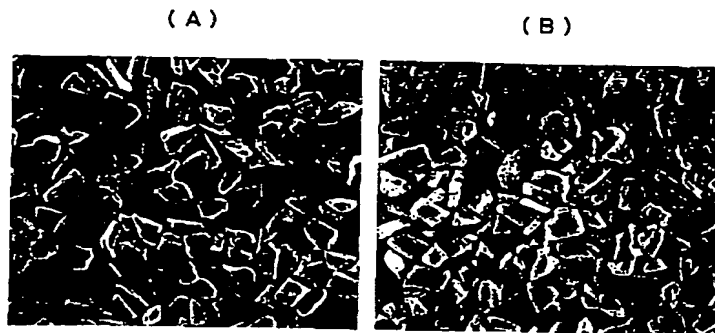
(A)



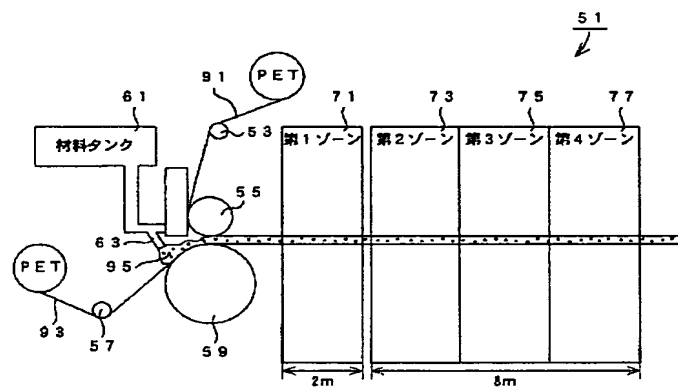
(B)



【図6】



【図7】



フロントページの続き

(51) Int. Cl.<sup>7</sup>  
H 0 1 F 27/22  
// C 0 9 K 5/08

識別記号

F I  
H 0 1 F 27/22  
C 0 9 K 5/00

テーマコード (参考)

D